

PC

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-194702

(43)Date of publication of application : 29.07.1997

(51)Int.Cl.

C08L 67/02

C08J 5/18

C08L 67/04

(21)Application number : 08-029988

(71)Applicant : DAICEL CHEM IND LTD

(22)Date of filing : 24.01.1996

(72)Inventor : KURODA TAKAYUKI

(54) BIODEGRADABLE FILM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject film sufficient in mechanical strength characteristics and weather resistance for packing and agriculture, excellent in biodegradability, comprising a resin composition prepared by mixing a polycaprolactone with an aliphatic polyester resin.

SOLUTION: This film is obtained by blending (A) 100 pts.wt. of an aliphatic polyester resin (a polyester resin of succinic acid and 1,4-butanediol) with (B) 1-200 pts.wt., preferably 4-55 pts.wt. of a polycaprolactone and forming the blend into a film by melt extrusion or a solution method. Biodegradability of the component A is induced by the component B and the film can be provided with sufficient mechanical strength characteristics and weather resistance.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any
damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The biodegradability film which consists of a polyester resin constituent which blended the poly-caprolactone 1 or 200 weight section to the aliphatic polyester resin 100 weight section.

[Claim 2] The biodegradability film which contains the polyester resin constituent which blended the poly-caprolactone 1 or 200 weight section to the aliphatic polyester resin 100 weight section 40% of the weight or more.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] this invention is a film which is excellent in the biodegradability which consists of a resin constituent of aliphatic polyester resin and a polycaprolactone, is excellent in a mechanical-strength property and weatherability, and relates to the biodegradability film which can be used for various biodegradability wrappings, the film for agriculture, etc.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, an aromatic polyester, a polyamide, etc. which are represented by polyethylene, polypropylene, the polyethylene terephthalate, etc. are used for the film for packing of various goods at first in food. Moreover, the film for agriculture is used for the purpose, such as adjustment of soil temperature, a sprout inhibition of weeds, a pollution control of crops, and protection, and typical materials are polyethylene, a polyvinyl chloride, a polyamide, etc.

[0003] Generally, used films are collected after use and receive processing of incineration processing, laying-under-the-ground-among soil processing, etc. However, in order for recovery to take a great effort and a great cost, or since recovery is difficult, it may be left, without being collected, and when a film is a difficulty resolvability, a problem arises in respect of environmental preservation. Moreover, in carrying out incineration processing of the collected film, there is also a possibility of the heat of combustion of a high calorie occurring, or damaging an incinerator with occurrence of corrosive gas. Furthermore, when laying-under-the-ground-among soil processing is performed, if a film is a difficulty resolvability, it will remain semipermanently in soil.

[0004] The technique of carrying out the mixing of the component which has biodegradabilities, such as a starch, to a polyethylene resin etc. that a biodegradability should be given to the resin of difficulty resolvabilities, such as such polyethylene, or a non-resolvability in recent years is examined. Moreover, how to carry out the mixing of the component which has biodegradabilities, such as the technique of giving photolysis nature to a polyethylene resin etc. or a polyethylene resin which gave photolysis nature, and a starch, etc. is examined.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, the mechanical strength of a film falls and the technique of carrying out the mixing of the component which has biodegradabilities, such as a starch, cannot hold the configuration of a film by the case. And by not attracting decomposition of polymer fractions other than a starch in the decomposition process, although the starch by which the mixing was carried out has a resolvability in itself, after all, although a film becomes a rose rose, it does not pass over it to only be cut finely, and it does not serve as a resolution of an essential problem. This can say that the same is said of grant of photolysis nature, although it causes a fall of polymerization degree by light, it does not necessarily have a biodegradability, and it is meaningless under the environment where light does not hit further.

[0006] The resin with which itself has a biodegradability on the other hand instead of such a resin that is

not a biodegradability in essence is developed as a biodegradability resin of the second generation, and the aliphatic polyester resin obtained by the chemosynthesis is in the thing applicable to this.

[0007] However, when macromolecule-izing aliphatic polyester resin by the polycondensation, a reaction is performed under the condition that elevated-temperature quantity reduced pressure is severe in the second half of a manufacturing process. For this reason, it is difficult for the depolymerization of the polyester resin which is not good as for a thermal stability to arise originally, and to acquire the high molecular weight field. Therefore, reservation of the intensity which is sufficient for the mechanical-strength property of the obtained film becoming inadequate, and expecting large intended-use expansion becomes difficult. In such a case, diisocyanate is made to react to the both-ends hydroxyl group of the aliphatic polyester of low molecular weight comparatively, and there is the technique of carrying out macromolecule quantification through a urethane bond. Although a high mechanical-strength property can be secured by macromolecule quantification, the disassembly of the film obtained on the other hand may become slow. From such status, it essentially has a biodegradability, and has a mechanical-strength property and weatherability, and the demand of a film which has the outstanding biodegradability is increasing.

[0008]

[Means for Solving the Problem] this invention person finds out that the film which consists of a resin constituent which carried out specified quantity combination of the poly-caprolactone as a result of repeating a research zealously about the constituent which consists of aliphatic polyester resin turns into the film in which a high biodegradability is shown when it has the mechanical-strength property and weatherability which can be substituted for the intended use of the conventional film satisfactory at all and combination of a poly-caprolactone attracts the biodegradation of aliphatic polyester resin, and came to complete this invention.

[0009] That is, this invention offers the biodegradability film which consists of a polyester resin constituent which blended the poly-caprolactone 1 or 200 weight section to the aliphatic polyester resin 100 weight section. Moreover, the biodegradability film which contains the polyester resin constituent which blended the poly-caprolactone 1 or 200 weight section to the aliphatic polyester resin 100 weight section 40% of the weight or more is offered. Hereafter, this invention is explained in detail.

[0010]

[Embodiments of the Invention] The polyester resin constituent used by this invention consists of a resin constituent of aliphatic polyester resin and a poly-caprolactone. Although the polyester resin obtained from the polyester resin obtained from a succinic acid and 1 and 4-butanediol, the polyester resin obtained from a succinic acid and ethylene glycol, the polyester resin obtained from oxalic acid and neopentyl glycol, oxalic acid, and 1 and 4-butanediol as aliphatic polyester resin, the polyester resin obtained from oxalic acid and ethylene glycol can be illustrated, the melting point is high and the polyester resin obtained from a succinic acid and 1 and 4-butanediol is desirable.

[0011] the desirable number average molecular weight of aliphatic polyester resin -- the domain of 30,000 or 1,000,000 -- it is the domain of 70,000 or 200,000 more preferably By a mechanical characteristic running short of average molecular weight or less by 30,000, or more by 1,000,000, a melt viscosity is too high at a film manufacturing process, and problems, like a knockout becomes difficult may be produced.

[0012] The poly-caprolactone used by this invention can make active hydrogens, such as alcohol, an initiator, and what obtained epsilon-caprolactone by the ring opening polymerization of a conventional method can be used for it. Especially a limit does not have the number of organic functions of the aforementioned initiator, and the thing of two organic functions or three organic functions can use it preferably. the number average molecular weight of a poly-caprolactone -- desirable -- the domain of 1,000 or 200,000 -- it is the domain of 5,000 or 100,000 especially preferably In addition, although the poly-caprolactone of number average molecular weight higher than 200,000 can also be used satisfactory in this invention, generally such a thing acquired for the poly-caprolactone with high molecular weight very much is difficult, and is not realistic. Moreover, the copolymer of the poly-caprolactone to use which used comonomers, such as a valerolactone, and glycolide, a lactide, in

addition to the single polymer of epsilon-caprolactone is also usable.

[0013] As for the polyester resin constituent used by this invention, it is desirable to mix the poly-caprolactone 1 or 200 weight section to the aliphatic polyester resin 100 weight section, and the poly-caprolactone 4 or 55 weight section is more preferably mixed to the aliphatic polyester resin 100 weight section. The film which is excellent in a biodegradability and is excellent in a mechanical-strength property and weatherability can be obtained by mixing in this domain.

[0014] On the biodegradability film of this invention, other biodegradability resinous principles and inorganic substances are also mixable if needed. It is desirable especially that a polyester resin constituent is 40 % of the weight or more to the resin constituent (others -- the sum of a component and the above-mentioned polyester resin constituent -- 100 % of the weight) obtained, and the blending ratio of coal of the above-mentioned polyester resin constituent and other components is 60 % of the weight or more. As other biodegradability resinous principles which can be mixed and used by this invention, the resin of a polyvinyl alcohol system, the resin of the copolymer system of 3-hydroxy butyrate and a 3-hydroxy burr rate, etc. can be illustrated. As other inorganic substances which can be mixed and used by this invention, a calcium carbonate, a magnesium carbonate, talc, a silica, etc. can be illustrated. In addition, polyester like a low-molecular-weight poly caprolactone can be added as a plasticizer in the above-mentioned domain, and pigments, such as a grinding agent and carbon black, an antioxidant, ultraviolet ray absorbents (for example, a ***** phenolic compound, a hindered amine compound, the Lynn system compound, etc.) (for example, a benzo phenolic compound, benzotriazol ****, a ***** rate compound, etc.), and the compound that has a cross-linking machine by the case can also be included.

[0015] The polyester resin constituent used by this invention is obtained by kneading aliphatic polyester resin and a poly-caprolactone, and the kneading technique of conventional methods, such as a biaxial extruder, can use it satisfactory as the kneading technique. When blending other components, it can obtain by kneading similarly.

[0016] The biodegradability film of this invention can carry out the melting knockout of the above-mentioned polyester resin constituent above the melting temperature of the resin constituent, or can manufacture it by the solution method. Extension film production can be carried out if needed by the tubular film process, the calender method, the uniaxial-stretching method, or the biaxial-stretching method. In addition, a film is extended and it considers as a split yarn, and weave this, it knits or what was carried out and obtained is contained in one mode of the film of this invention.

[0017] Let thickness of the biodegradability film obtained by the above-mentioned producing [a film] method be the film of various thickness according to the purpose. As an object for packing, 5 or the thickness of 600 micrometers is desirable. When using it as packing films, such as food, a tableware, and a camp supply, 5 or a 200-micrometer comparatively thin film is desirable. Moreover, when using it as bags, such as an object for fertilizer, the U.S. bag, and a dust recovery bag, 100 or a 800-micrometer comparatively thick film is desirable. Furthermore, in order to use it as a film for agriculture, a with a various thickness (5 or 800 micrometers) film can be used according to intended use. The film properties in the case of using it as a film for packing are two or more [200kg //cm] intensities and 20% or more of ductility preferably two or more / 100kg //cm] intensities and 10% or more of ductility.

[0018] The biodegradability film of this invention can be used for packing films, such as a packing material and food, the film for agriculture, etc. Furthermore, the biodegradability film of this invention can also be used with the gestalt of the laminated film with other films by the purpose of use.

[0019]

[Example] Hereafter, although an example explains this invention concretely, this invention is not limited to these.

[0020] (Example 1) The poly-caprolactone (Daicel Chemical Industries, Ltd. make "PLACCEL H7") 40 weight section was kneaded among the aliphatic polyester resin (number average molecular weight 70,000) 100 weight section of a succinic acid and 1 and 4-butanediol, and the polyester resin constituent was obtained. At 200 degrees C, the melting knockout of this was carried out, it carried out the cast, and the non-extended sheet was obtained. At 80 degrees C, this was performed to lengthwise, twice as many

biaxial extension as this was performed in longitudinal direction twice and after that, and the biodegradability film with a thickness of 50 micrometers was obtained. The obtained biodegradability film was laid underground into soil and appearance observation after three month progress was performed. Moreover, the frost shattering of the piece of a biodegradability film is carried out, and it is JIS. K6950 (1994) was evaluated. The city sewage sludge was used for sludge. Furthermore, the biodegradability film was immersed into the sterilized water and appearance observation after three month progress was performed. A result is shown in Table -1.

[0021] (Example 2) The poly-caprolactone (Daicel Chemical Industries, Ltd. make "PLACCEL H7") 15 weight section was kneaded among the aliphatic polyester resin (number average molecular weight 70,000) 100 weight section of a succinic acid and 1 and 4-butanediol, and the polyester resin constituent was obtained. At 200 degrees C, the melting knockout of this was carried out, it carried out the cast, and the non-extended sheet was obtained. At 80 degrees C, this was performed to lengthwise, twice as many biaxial extension as this was performed in longitudinal direction twice and after that, and the biodegradability film with a thickness of 50 micrometers was obtained. The examination same about the obtained biodegradability film as an example 1 was performed.

[0022] (Example 3) The poly-caprolactone (Daicel Chemical Industries, Ltd. make "PLACCEL H7") 100 weight section was kneaded among the aliphatic polyester resin (number average molecular weight 70,000) 100 weight section of a succinic acid and 1 and 4-butanediol, and the polyester resin constituent was obtained. At 200 degrees C, the melting knockout of this was carried out, it carried out the cast, and the non-extended sheet was obtained. At 80 degrees C, this was performed to lengthwise, twice as many biaxial extension as this was performed in longitudinal direction twice and after that, and the biodegradability film with a thickness of 50 micrometers was obtained. The examination same about the obtained biodegradability film as an example 1 was performed.

[0023] (Example 1 of a comparison) At 200 degrees C, the melting knockout of the aliphatic polyester resin (number average molecular weight 70,000) of a succinic acid and 1 and 4-butanediol was carried out, it carried out the cast, and the non-extended sheet was obtained. At 90 degrees C, this was performed to lengthwise, twice as many biaxial extension as this was performed in longitudinal direction twice and after that, and the film with a thickness of 50 micrometers was obtained. The examination same about the obtained film as an example 1 was performed.

[0024]

[Table 1]

表-1

	土中埋設3か月後 外観観察	J I S K 6 9 5 0 2 8 日培養後分解率	滅菌水中3か月浸漬後 外観観察
実施例 1	著しく分解	8 5 %	浸漬前と比べ変化無し
実施例 2	著しく分解	5 0 %	浸漬前と比べ変化無し
実施例 3	著しく分解	9 0 %	浸漬前と比べ変化無し
比較例 1	僅かに分解	5 %	浸漬前と比べ変化無し

[0025] The example showed that decomposition did not progress in the environment where a microorganism does not exist, but the film of this invention had high weatherability. On the other hand, the film of this invention is remarkably disassembled by the microorganism and it became clear that the resolvability of aliphatic polyester was attracted by combination of a poly-caprolactone.

[0026]

[Effect of the Invention] The weatherability and the mechanical strength which were excellent while it had the outstanding biodegradability also have the biodegradability film of this invention. Since it has the perfect biodegradability, even if it uses for the intended use in which the recovery after use is impossible, it decomposes under a natural environment and problems, such as environmental pollution, are not caused. For this reason, it is widely applicable to various wrapping intended use or the intended

use of the film for agriculture.

[Translation done.]

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **09194702 A**

(43) Date of publication of application: **29.07.97**

(51) Int. Cl.

C08L 67/02

C08J 5/18

C08L 67/04

(21) Application number: **08029988**

(22) Date of filing: **24.01.96**

(71) Applicant: **DAICEL CHEM IND LTD**

(72) Inventor: **KURODA TAKAYUKI**

(54) **BIODEGRADABLE FILM**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject film sufficient in mechanical strength characteristics and weather resistance for packing and agriculture, excellent in biodegradability, comprising a resin composition prepared by mixing a polycaprolactone with an aliphatic polyester resin.

SOLUTION: This film is obtained by blending (A) 100 pts.wt. of an aliphatic polyester resin (a polyester resin of succinic acid and 1,4-butanediol) with (B) 1-200 pts.wt., preferably 4-55 pts.wt. of a polycaprolactone and forming

the blend into a film by melt extrusion or a solution method. Biodegradability of the component A is induced by the component B and the film can be provided with sufficient mechanical strength characteristics and weather resistance.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-194702

(43) 公開日 平成9年(1997)7月29日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 67/02	L P D		C 0 8 L 67/02	L P D
C 0 8 J 5/18	C F D		C 0 8 J 5/18	C F D
C 0 8 L 67/04			C 0 8 L 67/04	

審査請求 未請求 請求項の数 2 F D (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平8-29988

(22) 出願日 平成8年(1996)1月24日

(71) 出願人 000002901

ダイセル化学工業株式会社
大阪府堺市鉄砲町1番地

(72) 発明者 黒田 隆之

広島県大竹市玖波4-4-1

(74) 代理人 弁理士 三浦 良和

(54) 【発明の名称】 生分解性フィルム

(57) 【要約】

【課題】 ポリエステル樹脂組成物からなり、機械強度特性と耐候性を有し、かつ優れた生分解性を有するフィルムを提供する。

【解決手段】 脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に對してポリカプロラク톤を1～200重量部を配合した生分解性ポリエステル樹脂組成物からなる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に
対しポリカプロラクトン1乃至200重量部を配合した
ポリエステル樹脂組成物からなる生分解性フィルム。

【請求項2】 脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に
対しポリカプロラクトン1乃至200重量部を配合した
ポリエステル樹脂組成物を40重量%以上含有する生分
解性フィルム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、脂肪族ポリエス
テル樹脂とポリカプロラクトンとの樹脂組成物からなる生
分解性に優れたフィルムであつて、機械強度特性、耐候
性に優れ、各種生分解性包装材料、農業用フィルム等に
使用し得る生分解性フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】 従来より、食品を初め各種商品の包装用
フィルムには、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエ
チレンテレフタレート等に代表される芳香族ポリエステル
やポリアミド等が使用されている。また農業用フィル
ムは、地温の調節、雑草の発芽防止、作物の汚染防止及
び保護等の目的で使用されており、代表的な素材はポリ
エチレン、ポリ塩化ビニル、ポリアミド等である。

【0003】 一般に、使用済みフィルムは使用後回収さ
れ、焼却処理や土中埋設処理等の処理を受ける。しかし
回収に多大な労力や費用を要するため、あるいは回収が
困難であるため、回収されずに放置される場合があり、
フィルムが難分解性である場合には環境保全の点で問題
が生じる。また回収したフィルムを焼却処理する場合に
は、高カロリーの燃焼熱が発生し、あるいは腐食性のガ
スの発生を伴い焼却炉を損傷するおそれもある。さら
に、土中埋設処理を行った場合、フィルムが難分解性で
あれば土中に半永久的に残留することになる。

【0004】 近年、このようなポリエチレン等の難分解
性あるいは不分解性の樹脂に生分解性を付与すべく、例
えば澱粉などの生分解性を有する成分をポリエチレン樹
脂等に混和する方法が検討されている。また、ポリエチ
レン樹脂等に光分解性を付与する方法、あるいは光分解
性を付与したポリエチレン樹脂等と澱粉等の生分解性を
有する成分とを混和する方法なども検討されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、澱粉等の生分
解性を有する成分を混和する方法は、フィルムの機械強
度が低下し、場合によってはフィルムの形状が保持でき
ない。しかも、混和された澱粉はそれ自体分解性を有す
るが、その分解過程において澱粉以外の成分の一部の
分解を誘引せず、結局はフィルムはバラバラにはな
る。単に細かく切断されるにすぎず本質的な問題の解決
とはならない。これは光分解性の付与についても同様の
ことがいえる。光によって重合度の低下を引き起こすが生

分解性を有するわけではなく、さらに光が当たらない環
境下では意味がない。

【0006】 一方、このような本質的に生分解性でない
樹脂に代わり、それ自体が生分解性を有する樹脂が第
世代の生分解性樹脂として開発され、これに該当するも
のに化学合成で得られる脂肪族ポリエステル樹脂があ
る。

【0007】 しかし脂肪族ポリエステル樹脂は、重合合
で高分子化する場合、製造工程の後半で高温高減圧の厳
しい条件下で反応が行われる。このため元素熱安定性の
よくないポリエステル樹脂の解重合が生じ、高分子量体
を得るのは困難である。従つて得られたフィルムの機械
強度特性が不十分となり、広い用途展開を期待するに足
る強度の確保が困難となる。かかる場合、比較的分子量
量の脂肪族ポリエステルの両末端酸基に、ジイソシア
ネートを反応させ、ウレタン結合を介して高分子量化す
る方法がある。高分子量化により高い機械強度特性を確
保し得るか、その一方、得られたフィルム等の分解が遅
くなる場合がある。このような状況から、本質的に生分
解性を有し、かつ機械強度特性と耐候性とを有し、かつ
優れた生分解性を有するフィルムの要求が高まつてい
る。

【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明者は、脂肪族ポリ
エステル樹脂からなる組成物について鋭意研究を重ねた
結果、ポリカプロラクトンと所定量配合した樹脂組成物
からなるフィルムが、従来のフィルムの用途に何等問題
なく代替し得る機械強度特性や耐候性を有し、かつ、ポ
リカプロラクトンの配合が脂肪族ポリエステル樹脂の生
分解を誘引することにより、高い生分解性を示すフィル
ムとなることを見い出し、本発明を完成するに至つた。

【0009】 すなわち本発明は、脂肪族ポリエステル樹
脂100重量部に対しポリカプロラクトン1乃至200
重量部を配合したポリエステル樹脂組成物からなる生分
解性フィルムを提供するものである。また、脂肪族ポリ
エステル樹脂100重量部に対しポリカプロラクトン1
乃至200重量部を配合したポリエステル樹脂組成物を
40重量%以上含有する生分解性フィルムを提供するも
のである。以下、本発明を詳細に説明する。

【0010】

【発明の実施の形態】 本発明で使用するポリエステル樹
脂組成物は、脂肪族ポリエステル樹脂とポリカプロラク
トンとの樹脂組成物からなる。脂肪族ポリエステル樹脂
としては、コハク酸と1,4-ブタンジオールとから得
られるポリエステル樹脂、コハク酸とエチレングリコール
とから得られるポリエステル樹脂、シクロヘキサジカル
ボン酸と1,4-ブタンジオールとから得られるポリエ
ステル樹脂、シクロヘキサジカルボン酸とエチレングリ
コールとから得られるポリエステル樹脂等が例として
できるが、融点が高く、好

ましいのは、ヘンク酸と1,4-ヘキサンジオールとから得られるポリヘンステル樹脂である。

【0011】脂肪族ポリヘンステル樹脂の好ましい数平均分子量は、30,000乃至1,000,000の範囲、より好ましくは70,000乃至200,000の範囲である。平均分子量が30,000以下では機械特性が不足し、1,000,000以上ではフィルム製造工程で溶融粘度が高すぎ、押し出しが困難になる等の問題を生ずる場合がある。

【0012】本発明で使用するポリカプロラクトンは、アルコール等の活性水素を開始剤とし、 γ -カプロラクトンを常法の環重合で得たものを使用することができ、前記開始剤の官能数は特に制限はなく、2官能や3官能のものか好ましく使用できる。ポリカプロラクトンの数平均分子量は、好ましくは、1,000乃至200,000の範囲、特に好ましくは5,000乃至100,000の範囲である。尚、200,000よりも高い数平均分子量のポリカプロラクトンも本発明において問題なく使用することができるが、このような非常に分子量の高いポリカプロラクトンを得ることは一般に困難で現実的ではない。また、使用するポリカプロラクトンは、 γ -カプロラクトンの単重合体以外に、バレロラクトンやクリコリド、ラクチド等のコモノマーを使用した共重合体も使用可能である。

【0013】本発明で使用するポリヘンステル樹脂組成物は、脂肪族ポリヘンステル樹脂100重量部に対しポリカプロラクトン1乃至200重量部を混合したものであることが好ましく、より好ましくは脂肪族ポリヘンステル樹脂100重量部に対しポリカプロラクトン4乃至55重量部を混合したものである。この範囲で混合することにより生分解性に優れ、かつ機械強度特性および耐候性に優れるフィルムを得ることができる。

【0014】本発明の生分解性フィルムには、必要に応じて他の生分解性樹脂成分や無機物を混合することもできる。上記したポリヘンステル樹脂組成物と他の成分との配合割合は、得られる樹脂組成物（他の成分と上記ポリヘンステル樹脂組成物との合計は100重量%）に対しポリヘンステル樹脂組成物が40重量%以上であることが好ましく、特に好ましくは60重量%以上である。本発明で混合して用いることができる他の生分解性樹脂成分としては、グリセリルアルコール系の樹脂、3-ヒドロキシ辛酸エステルと3-ヒドロキシヘキレートとの共重合体系の樹脂等を例示することができる。本発明で混合して用いることができる他の無機物としては、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、タルク、シリカ等を例示することができる。その他、上記範囲で低分子量ポリカプロラクトンの様なポリ乳酸等を、可塑剤として添加することもでき、顔料・染料、カーボンブラック等の顔料、酸化防止剤（例えば、ジブチルパーオキシ化合物、ヒンダー

例えば、 α -ナフチル化合物、 α -ピクリン酸、 α -フェノール化合物、サリチル酸化合物等）、また場合によっては架橋性を有する化合物を含むこともできる。

【0015】本発明で使用するポリヘンステル樹脂組成物は、脂肪族ポリヘンステル樹脂とポリカプロラクトンとを混練することにより得られ、その混練方法としては、2軸押し出し機等の常法の混練方法が問題なく使用できる。他の成分を配合する場合にも同様に混練により得ることができる。

【0016】本発明の生分解性フィルムは、上記ポリヘンステル樹脂組成物を、その樹脂組成物の溶融温度以上で溶融押し出しし、または溶液法により製造することができる。必要に応じてインフレーション法、カレンダー法、一軸延伸法、或いは二軸延伸法等により延伸製膜することができる。なお、フィルムを延伸しスチレットヤーンとし、これを織ったり編んだりして得たものも本発明のフィルムの形態に含まれる。

【0017】上記製膜法によって得られる生分解性フィルムの厚さは、その目的に応じて種々の厚さのフィルムとすることができる。包装用としては5乃至600 μ mの厚さが好ましい。食料品、食器類、キャンプ用品等の包装フィルムとして使用する場合は、5乃至200 μ mの比較的薄いフィルムが好ましい。また、肥料用、米袋、ゴミ回収袋等の袋として使用する場合は、100乃至800 μ mの比較的厚いフィルムが好ましい。さらに、農業用フィルムとして使用するには、5乃至800 μ mの色々な厚みのフィルムを用途に応じて使用することができる。包装用フィルムとして使用する場合のフィルム特性は、強度100kg/cm²以上、伸度10%以上、好ましくは強度200kg/cm²以上、伸度20%以上である。

【0018】本発明の生分解性フィルムは、包装材、食料品等の包装フィルム、農業用フィルム等に使用することができる。さらに、使用目的により、本発明の生分解性フィルムを他のフィルムとの積層フィルムの形態で使用することもできる。

【0019】

【実施例】以下、実施例により本発明を具体的に説明するか、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0020】（実施例1）ヘンク酸と1,4-ヘキサンジオールとの脂肪族ポリヘンステル樹脂（数平均分子量70,000）100重量部にポリカプロラクトン（ダイセル化学工業社製「PLACCEL-H7」）40重量部を混練し、ポリヘンステル樹脂組成物を得た。これを200℃で溶融押し出し、キャストして未延伸シートを得た。これを80℃で縦方向に2倍、その後、横方向に2倍の2軸延伸を行い、厚み50 μ mの生分解性フィルムを得た。得られた生分解性フィルムを土中に埋設し、3か月経過後の外観観察を行った。また、生分解性フィルム片を凍結粉砕してJIS-K6950（1994）

の評価を行った。汚泥には都市下水汚泥を使用した。さらに、生分解性フィルムを滅菌水中に浸漬し、3か月経過後の外観観察を行った。結果を表-1に示す。

【0021】(実施例2) コハク酸と1, 4-ブタンジオールとの脂肪族ポリエステル樹脂(数平均分子量70, 000) 100重量部にポリカプロラクトン(ダイセル化学工業社製「PLACCEL H7」) 15重量部を混練し、ポリエステル樹脂組成物を得た。これを200℃で溶融押し出しし、キャストして未延伸シートを得た。これを80℃で縦方向に2倍、その後、横方向に2倍の2軸延伸を行い、厚み50 μ mの生分解性フィルムを得た。得られた生分解性フィルムについて実施例1と同様の試験を行った。

【0022】(実施例3) コハク酸と1, 4-ブタンジオールとの脂肪族ポリエステル樹脂(数平均分子量70, 000) 100重量部にポリカプロラクトン(ダイセル化学工業社製「PLACCEL H7」) 15重量部を混練し、ポリエステル樹脂組成物を得た。これを200℃で溶融押し出しし、キャストして未延伸シートを得た。これを80℃で縦方向に2倍、その後、横方向に2倍の2軸延伸を行い、厚み50 μ mの生分解性フィルムを得た。得られた生分解性フィルムについて実施例1と同様の試験を行った。

表-1

	土中埋設3か月後 外観観察	JIS K6950 28日培養後分解率	滅菌水中3か月浸漬後 外観観察
実施例1	著しく分解	85%	浸漬前と比べ変化無し
実施例2	著しく分解	50%	浸漬前と比べ変化無し
実施例3	著しく分解	90%	浸漬前と比べ変化無し
比較例1	僅かに分解	5%	浸漬前と比べ変化無し

【0025】実施例より、本発明のフィルムは、微生物が存在しない環境では分解が進まず、耐候性が高いことが分かった。一方、本発明のフィルムは微生物により著しく分解され、ポリカプロラクトンの配合により脂肪族ポリエステルの分解性が誘引されたことが判明した。

【0026】

【発明の効果】本発明の生分解性フィルムは、優れた生

*セル化学工業社製「PLACCEL H7」) 100重量部を混練し、ポリエステル樹脂組成物を得た。これを200℃で溶融押し出しし、キャストして未延伸シートを得た。これを80℃で縦方向に2倍、その後、横方向に2倍の2軸延伸を行い、厚み50 μ mの生分解性フィルムを得た。得られた生分解性フィルムについて実施例1と同様の試験を行った。

【0023】(比較例1) コハク酸と1, 4-ブタンジオールとの脂肪族ポリエステル樹脂(数平均分子量70, 000)を200℃で溶融押し出しし、キャストして未延伸シートを得た。これを90℃で縦方向に2倍、その後、横方向に2倍の2軸延伸を行い、厚み50 μ mのフィルムを得た。得られたフィルムについて実施例1と同様の試験を行った。

【0024】

【表1】

※ 分解性を有すると共に優れた耐候性、機械強度も有している。完全な生分解性を有しているため、使用後回収不可能な用途に用いても自然環境下で分解し、環境公害等の問題を引き起こすことがない。このため、種々の包装材料用途や農業用フィルムの用途に広く応用することが出来る。